

Structure and Magnetic Properties of Fe-Co-based Amorphous and Nanocrystalline Soft Magnetic Alloys(Fe-Co基アモルファス及びナノ結 晶軟磁性合金の構造と磁気的特性)

著者	金 亨 淵
号	3426
発行年	2004
URL	http://hdl.handle.net/10097/8698

氏 名	きむ ひゃんよん
授 与 学 位	金 享 淵 博士 (工学)
学 位 授 与 年 月 日	平成 17 年 3 月 25 日
学 位 授 与 の 根 拠 法 規	学位規則第 4 条第 1 項
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 材料物性学専攻
学 位 論 文 題 目	Structure and Magnetic Properties of Fe-Co-based Amorphous and Nanocrystalline Soft Magnetic Alloys (Fe-Co 基アモルファス及びナノ結晶軟磁性合金の構造と磁気的特性)
指 導 教 員	東北大学教授 井上 明久
論 文 審 査 委 員	主査 東北大学教授 井上 明久 東北大学教授 岡田 益男 東北大学教授 松原 英一郎

論 文 内 容 要 旨

This paper deals with the development of Fe-Co-based nanocrystalline soft magnetic materials which can be used at high temperatures up to about 873K. The material has compositions of $\text{Fe}_{62}\text{Co}_{10}\text{Si}_{10}\text{B}_{13}\text{Nb}_4\text{TM}_1$ where TM is transition metal (e.g. Ni, Cr, V, Pd, Pt, Ti, Ta and Zr). Amorphous alloys were prepared by a single wheel melt spinning technique, followed by annealing for nanocrystallization. The samples, in the form of ribbon, were characterized by the following techniques: differential scanning calorimetry (DSC), differential thermal analysis (DTA), conventional X-ray diffraction (XRD), transmission electron microscopy (TEM), vibrating sample magnetometry, B-H analyzer and impedance analyzer.

We examined the crystallization behavior and magnetic properties of $\text{Fe}_{62}\text{Co}_{10}\text{Si}_{15-x}\text{B}_{18-y}\text{Nb}_{(x+y)}$ amorphous alloys with $x=0-5$ and $y=0-5$. Primary crystallization temperature of the $\text{Fe}_{62}\text{Co}_{10}\text{Si}_{15-x}\text{B}_{13}\text{Nb}_x$ and $\text{Fe}_{62}\text{Co}_{10}\text{Si}_{10}\text{B}_{18-y}\text{Nb}_y$ amorphous alloys increased by the addition of Nb. The primary and second crystallization temperatures were well separated when the Nb content was above 4 at%. The alloys with

15-18 at% B showed a distinct supercooled region. The Nb addition decreased Curie temperature as well as room temperature saturation magnetization. The glassy-type $\text{Fe}_{62}\text{Co}_{10}\text{B}_{18}\text{Si}_{10}$ alloy exhibited good soft magnetic properties in conjunction with a supercooled liquid region of 39 K.

We also examined crystallization and magnetic behavior of melt-spun $\text{Fe}_{62}\text{Co}_{10}\text{Si}_{10}\text{B}_{13}\text{Nb}_4\text{TM}_1$ amorphous alloy ribbons where TM = Ni, Cr, V, Pd, Pt, Ti, Ta and Zr. The alloy with Pt showed the lowest crystallization temperature of 823 K among the studied alloys. Significant increase in crystallization temperature was recognized when the atomic radius of the transition metal deviated from that of Pt. High Curie temperature and high saturation magnetization were obtained for the alloys containing Pd, Pt or Ti. The amorphous alloys except the alloys containing Ti or V showed good soft magnetic properties.

Amorphous alloys with composition $\text{Fe}_{(85-x-y)}\text{Co}_{10}\text{B}_x\text{Si}_y\text{Nb}_4\text{Pd}_1$ were produced by a single roller melt spinning process. Nanocrystallization of this precursor alloy ribbon was carried out by isothermal annealing at the temperature between the primary crystallization temperature and the second crystallization temperature. Prior to annealing, the temperature for nanocrystallization was determined by differential scanning calorimetry, or differential thermal analysis. The temperature were 773 K and 973 K, respectively, primary and secondary crystallization.

The X-ray diffraction studies provided information about crystallization products after annealing at different temperature. Conventional results showed the formation of the α -FeCo(Si) phase as the phase formed by primary crystallization.

The effect of the addition of Pd, Pt and Cu on the crystallization behavior and on the synthesis of

nanocrystalline soft magnetic alloys was investigated for amorphous $\text{Fe}_{70}\text{Co}_{10}\text{Si}_6\text{B}_8\text{Nb}_4(\text{Pd, Pt})_1(\text{Cu})_1$ alloys. The amorphous phase without crystalline phase was formed for the alloys with 70 at% Fe and 0 to 6 at% Si and an α -FeCo(Si) phase with nanoscale grain size of about 30~100nm was formed by annealing the amorphous alloys for 1.8 ks in the range of 823 to 923 K. The coercivity (H_c) and effective permeability (μ_e) were improved to 30.75 A/m~53.91 A/m and $3.0 \times 10^3 \sim 5.1 \times 10^3$ at 1kHz, respectively, by adding a small amount of Pd, Pt or Cu to $\text{Fe}_{71}\text{Co}_{10}\text{Si}_6\text{B}_9\text{Nb}_4$ alloys, in addition to a high saturation magnetization (B_s) ranging from 1.52 to 1.66 T.

The $\text{Fe}_{70}\text{Co}_{10}\text{Si}_6\text{B}_8\text{Nb}_4\text{Pd}_1\text{Cu}_1$ alloy exhibited good soft magnetic properties of coercivity (H_c) of 30.8 A/m and effective permeability (μ_e) of 5.1×10^3 at 1kHz, in conjunction with a high saturation magnetization (B_s) to 1.66 T.

論文審査結果の要旨

本論文は、高温環境で使用可能な Fe-Co 基ナノ結晶軟磁性合金の開発を目的として液体急冷法で作製した Fe-Co 基アモルファス合金及びその後熱処理により作製したナノ結晶軟磁性合金の構造、組織および磁気特性を調べた結果をまとめたものである。Fe-Co-Si-B 系合金においてアモルファス形成能を高めると共に軟磁気特性を向上するため、種々な遷移金属を含むアモルファス合金を熱処理した時にナノ粒径の bcc-Fe 相が析出するように半金属 (Si, B) 組成を最適化した。さらに優れた軟磁気特性を得るために、この合金系に Co を添加し、その特性の変化を調べた。このように本論文は、873K 近傍の高温環境で使用可能な Fe-Co-Si-B-TM (TM=遷移金属) 系合金の軟磁気特性の向上を目指した成果をまとめたものである。本論文の要点は、以下のようにまとめられる。

(1) Fe-Co-Si-B-Nb アモルファス合金の結晶化挙動と磁気特性に及ぼす Nb 添加の効果について調べた。その結果、

Nb 量の増加と共に Fe-Co-Si-B-Nb アモルファス合金の第 1 結晶化温度は上昇した。第 1 結晶化温度と第 2 結晶化温度の差は 4 at% Nb で最大値を示した。一方、キュリー温度と飽和磁化は Nb 量の増加に伴って低下した。

(2) $\text{Fe}_{62}\text{Co}_{10}\text{Si}_{10}\text{B}_{13}\text{Nb}_4\text{TM}_1$ (TM = Ni, Cr, V, Pd, Pt, Ti, Ta and Zr) アモルファス合金の結晶化挙動と磁気特性に及ぼす遷移金属の添加効果について調べた。 $\text{Fe}_{62}\text{Co}_{10}\text{Si}_{10}\text{B}_{13}\text{Nb}_4\text{TM}_1$ 系合金において Pt を添加した時、結晶化温度は 823K の最低値を示した。 $\text{Fe}_{62}\text{Co}_{10}\text{Si}_{10}\text{B}_{13}\text{Nb}_4\text{TM}_1$ アモルファス合金の結晶化温度は添加金属の原子寸法によって変化し、原子寸法が 0.14 nm の Pt を添加した時に最高の結晶化温度をすと共に、キュリー温度と飽和磁束密度も Pt 添加の場合に高い値を示した。

(3) $\text{Fe}_{(85-x-y)}\text{Co}_{10}\text{Si}_x\text{B}_y\text{Nb}_4\text{Pd}_1$ アモルファス合金及びナノ結晶合金の結晶化挙動と磁気特性を調べた。この合金系においては 70 at% Fe と 0~6at% Si の組成範囲でアモルファス相が形成された。このアモルファス合金を 823~923 K の温度範囲で 30 分間熱処理した後、アモルファス相中にナノ粒径の α -FeCo(Si) 結晶相が析出し、保磁力 (H_c) が 53.9 A/m、1 kHz での実効透磁率 (μ_e) が 3.0×10^3 の軟磁気特性を示した。また、 $\text{Fe}_{70}\text{Co}_{10}\text{Si}_6\text{B}_9\text{Nb}_4\text{Pd}_1$ 合金では、 α -FeCo(Si) ナノ結晶相がアモルファス相中に均一に析出し、そのナノ複相合金は最高 1.66 T の高飽和磁束密度を示した。

このように、本研究では FeCo 基合金系に最少量の半金属と遷移金属を添加し、その合金の組織と磁気特性を調

べた結果、アモルファス相中にナノ粒径の α -FeCo(Si) 結晶が均一に析出することによって得たナノ複相組織において、強磁性アモルファス相を介した α -FeCo(Si) 結晶相間の磁気交換作用の利用により最高 1.66T の高い飽和磁束密度を実現し、優れた軟磁気特性を示す新組成の FeCo 基軟磁性合金の創出を果たした。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。